

Андреевская спектроскопия точечных контактов низкотемпературный сверхпроводник–манганит

А.И. Дьяченко, В.Н. Криворучко, В.Ю. Таренков

Донецкий физико-технический институт им. А.А. Галкина НАН Украины
ул. Р. Люксембург, 72, г. Донецк, 83114, Украина
E-mail: krivoruc@krivoruc.fti.ac.donetsk.ua

Статья поступила в редакцию 21 февраля 2006 г., после переработки 9 марта 2006 г.

Исследовано андреевское отражение в контактах низкотемпературный сверхпроводник (Pb и MgB_2) – манганит $La_{0,65}Ca_{0,35}MnO_3$ (LCMO). В большинстве случаев наблюдались характерное для контактов сверхпроводник/половинный ферромагнитный металл избыточное *напряжение* V_{exc} и *подавление* проводимости контакта $G(V) = dI(V)/dV$ в области напряжений $e|V| \leq \Delta_S$, где Δ_S – энергетическая щель инжектора. Однако ряд контактов при $e|V| \leq \Delta_S$ демонстрировал *увеличение* проводимости и избыточный *ток* I_{exc} на вольт-амперной характеристике контакта. Характер наблюдаемой зависимости $dI(V)/dV$ таких контактов соответствовал андреевским спектрам сверхпроводника с энергетической щелью *много большей* щели инжектора Δ_S . Предполагается, что в контактах такого типа реализованы специфические условия, благодаря которым проникновение в манганит куперовских пар из электрода с *синглетным* параметром порядка индуцирует в поверхностной области манганита сверхпроводящее состояние с *триплетным* типом корреляций.

Досліджено андріївське відбиття у контактах низькотемпературний надпровідник (Pb та MgB_2) – манганіт $La_{0,65}Ca_{0,35}MnO_3$ (LCMO). У більшості випадків спостерігалися характерна для контактів надпровідник/половинний феромагнітний метал надлишкова *напруга* V_{exc} та *заглушення* провідності контакту $G(V) = dI(V)/dV$ у області напруг $e|V| \leq \Delta_S$, де Δ_S – енергетична щілина інжектора. Але певна кількість контактів при $e|V| \leq \Delta_S$ демонструвала *збільшення* провідності та надлишковий *струм* I_{exc} на вольт-амперній характеристиці контакту. Характер залежностей $dI(V)/dV$ таких контактів, що спостерігався, відповідав андріївським спектрам надпровідника з енергетичною щілиною *значно більшою* щілини інжектора Δ_S . Припускається, що у контактах такого типу реалізуються специфічні умови, завдяки котрим проникнення у манганіт куперівських пар з електроду із *синглетним* параметром порядку індукує у поверхневій області манганіту надпровідний стан із *триплетним* типом кореляцій.

PACS: 74.25.+c, 74.78.Fk, 74.50.+r, 75.70.Kw

Ключевые слова: эффект близости, андреевское отражение, половинный ферромагнитный металл, контактная спектроскопия, триплетная сверхпроводимость.

1. Введение

Метод андреевской спектроскопии является прямым и чувствительным методом исследования таких микроскопических характеристик сверхпроводника, как плотность квазичастичных состояний, величина сверхпроводящей щели, симметрия сверхпроводящего спаривания и др. Недавно, например, используя возможности нелокального андреевского

отражения, была непосредственно исследована спиновая структура куперовской пары [1–3]. Напомним, что на границе синглетный сверхпроводник/нормальный металл (sS/N) электрон, проникающий из N -металла со спином, например, \uparrow , образует в сверхпроводнике куперовскую пару (два электрона со спинами $\uparrow\downarrow$). Необходимый для этого электрон со спином \downarrow изымается из металла [4]. В результате в металле образуется дырка с противополо-

ложным импульсом и ориентацией спина \uparrow . Такой механизм прохождения тока реализуется, если в N -металле имеются занятые электронные состояния со спином \downarrow . В ферромагнитных металлах плотность состояний на поверхности Ферми для одной из ориентаций спина может быть аномально малой. В результате механизм андреевского токопереноса в контактах синглетный сверхпроводник/ферромагнитный металл (sS/F -контакты) существенно подавлен [5–7]. В частности, при отсутствии барьера на границе результирующая проводимость sS/F -контакта стремится к пределу $G(eV \rightarrow 0)/(2G_N) = 1 - P_C$ [5], где P_C — степень спиновой поляризации носителей заряда, V — напряжение смещения на контакте, e — заряд электрона, G_N — проводимость контакта в нормальном состоянии.

В ферромагнитной фазе манганиты относятся к так называемым половинным ферромагнитным металлам (half-metallic ferromagnets (HMF)) [8–12]. В идеальном случае при низких температурах такой материал является металлом только для электронов с одной ориентацией спина (\uparrow), в то время как для электронов с противоположной ориентацией спина (\downarrow) — это диэлектрик. Материалы с указанными характеристиками необходимы в спиновой электронике как «источники» и «приемники» поляризованных по спину носителей заряда [13,14]. Степень спиновой поляризации транспортного тока наиболее адекватно, по-видимому, можно восстановить по спектрам андреевского отражения. С точки зрения фундаментальных исследований половинные металлы интересны как системы, для которых не применимы, например, такие стандартные представления теории ферми-жидкости как квазичастицы (см., например, [11,15]). Кроме того, ряд теоретических исследований последних лет предсказывает наличие аномального эффекта близости и триплетный тип наведенной сверхпроводимости в sS/HMF и sS/F структурах (см., например, обзор [16]). Хотя некоторые экспериментальные результаты и можно интерпретировать в пользу существования такого явления [17–20], прямых экспериментальных доказательств триплетного сверхпроводящего спаривания в близостных sS/F -системах в настоящее время нет. Такими доказательствами могли бы быть, например, результаты спектроскопических исследований спектров андреевского отражения в точечных sS/HMF -контактах. Действительно, в контактах половинного металла и триплетного сверхпроводника (tS/HMF -контакты) электрон, проникающий из половинного металла со спином \uparrow , образует в сверхпроводнике пару с суммарным спином $S_Z = 1$, избыточная необходимая для этого электрон из половинно-

го металла. То есть в tS/HMF -контактах должны наблюдаться признаки «обычного» андреевского токопереноса: избыточный свертток и удвоение проводимости контакта [21]. Именно спектры андреевского отражения в точечных sS/HMF -контактах могли бы дать прямые экспериментальные доказательства существования наведенной триплетной сверхпроводимости в таких структурах.

В настоящей работе методами андреевской спектроскопии исследованы свойства контактов низкотемпературный сверхпроводник — манганит. В качестве сверхпроводящих электродов выбраны сверхпроводящие материалы Pb и MgB_2 с существенно различающимися микроскопическими свойствами. В качестве половинного металла взят манганит $La_{0,65}Ca_{0,35}MnO_3$ (LCMO) — типичный и хорошо изученный представитель семейства материалов, обладающих гигантским магниторезистивным эффектом [8–11]. Обнаружено два качественно разных типа поведения проводимости контактов. В большинстве случаев наблюдалось характерное для sS/HMF -контактов *подавление* проводимости контакта $G(V) = dI/dV$ в области напряжений $e|V| \leq \Delta_S$, где Δ_S — энергетическая щель S инжектора, и избыточное *напряжение* V_{exc} на вольт-амперной зависимости контакта. Однако ряд контактов демонстрировал *увеличение* проводимости и избыточный *ток* I_{exc} в вольт-амперной характеристике контакта. Вид наблюдаемой зависимости $dI/dV(V)$ контактов соответствовал андреевским спектрам сверхпроводника с энергетической щелью квазичастичных возбуждений $\Delta_q \gg \Delta_S$, а величина избыточного тока была близка к теоретическому соотношению $I_{exc} = (4/3)\Delta_q/eR_N$ [22,23] с тем же значением Δ_q (R_N — сопротивление контакта в нормальном состоянии), то есть наблюдаемый избыточный ток не может быть объяснен сверхпроводимостью инжектора.

Структура работы следующая. Во втором разделе изложены основные особенности приготовления образцов и экспериментальная методика. В следующих разделах приведены результаты исследований и их обсуждение. Они сгруппированы в соответствии с физикой наблюдаемых явлений. Разделы 3.1 и 4.1 посвящены результатам, полученным на контактах, для которых эффекты близости не являются определяющими. (Результаты, полученные на контактах Pb/ $La_{0,65}Ca_{0,35}MnO_3$ такого типа, опубликованы в работе [24] и здесь кратко приводятся для сравнения со спектрами андреевского отражения в близостных контактах и получения единой картины андреевского отражения в sS/HMF -структурах.) Центральными являются разделы 3.2 и 4.2. В них изложены экспериментальные данные и обсуждают-

ся возможные механизмы и модели реализации триплетной сверхпроводимости в близостных sS/HMF -структурах.

2. Эксперимент

Для получения образцов керамический порошок $La_{0,65}Ca_{0,35}MnO_3$, полученный по стандартной технологии, прессовался в виде пластинок размерами $0,1 \times 1 \times 10$ мм под давлением $P = 20$ кбар. Пластины отжигались при температуре 1250 °С в течение 4 часов, а затем в течение 2 часов при $T = 1300$ °С. В результате в пластинках возникала структура из хорошо сформированных микрокристаллов с размерами 10–15 мкм. Согласно рентгеновскому анализу, полученные образцы были однофазными с параметрами решетки, соответствующими литературным данным [8]. Переход диэлектрик – металл наблюдался в окрестности перехода в магнитоупорядоченное состояние с температурой Кюри $T_C \approx 265$ К.

Для приготовления контактов на микрокристаллах ЛСМО использована техника скользящего касания электрода, который имел игольчатую форму (см. вставку на рис. 1). Сверхпроводящие электроды изготовлены из Pb и MgB_2 . Точечные контакты Pb (MgB_2)/ЛСМО изготавливали как при комнатной, так и при гелиевой температуре. Контакты обладали высокой стабильностью параметров, что позволяло исследовать их характеристики в широком интервале температур. Сопротивление контактов составляло несколько десятков ом и могло регулироваться деформацией пружины из бериллиевой бронзы, прижимающей металлический электрод. Природа образовавшегося контакта определялась по характеру его проводимости в достаточно широком интервале напряжений смещения и температур. Для спектроскопических исследований выбирали контакты с металлическим типом проводимости (с минимальным значением параметра «туннельности» Z в теории БТК [22]). Такую процедуру получения образцов для спектроскопических исследований сверхпроводников и металлов широко используют в контактной спектроскопии [25].

Измерения транспортных характеристик манганита проводили по стандартной четырехзондовой схеме. Токовые и потенциальные контакты на пластинках ЛСМО были приготовлены нанесением серебряной пасты с последующим нагревом до 450 °С, обеспечивающим диффузию серебра в поверхностный слой образца. Они имели переходное сопротивление $R_{\square} = 10^{-8}$ Ом·см². Магниторезистивный эффект — относительное изменение сопротивления в магнитном поле $\delta R/R(H)$ — при азотной температуре в поле $H = 300$ Э составлял всего 0,3%, что указывает на несущественный вклад в проводимость

образцов контактов между гранулами [8,26]. Измерение характеристик контакта проводили по модуляционной методике в режиме заданного напряжения. Температурные зависимости сопротивления контакта восстанавливались при амплитуде переменного напряжения на образце 400 мкВ. Характеристики динамической проводимости $(dI/dV)(V)$ контакта были получены при модуляции напряжения на контакте 150–200 мкВ.

Диаметр d точечного контакта с сопротивлением R_N определяли по формуле Векслера [27]:

$$R_N \approx \frac{4}{3\pi} \frac{\rho l}{d^2} + \frac{\rho}{2d}, \quad (1)$$

где ρ — удельное сопротивление кристалла, а l — длина свободного пробега носителей заряда. В металлах длину свободного пробега l можно оценить по формуле для проводимости σ :

$$\sigma = e^2 N(E_F) D, \quad D = l v_F / 3, \quad (2)$$

где D — коэффициент диффузии электронов, $N(E_F)$ — плотность состояний, а v_F — скорость электронов на поверхности Ферми. Для монокристаллов и пленок ЛСМО ($x = 0,3-0,25$) характерно значение $\rho(T = 4,2 \text{ К}) \sim 100-150 \cdot 10^{-6}$ Ом·см [8,28,29], что, возможно, является оценкой сверху. При 4,2 К для удельного сопротивления ρ исследованных нами микрокристаллов бралось нижнее значение $\rho \sim 2 \cdot 10^{-4}$ Ом·см (отметим, что это значение всего в два раза меньше измеренного нами удельного сопротивления образца). Зонные расчеты методом LSDA [30] для скорости Ферми v_F и плотности состояний $N(E_F)$ дают значения: $v_F \uparrow = 7,4 \cdot 10^7$ см/с, $N_{\uparrow}(E_F) = 0,58$ эВ⁻¹ (на ион Mn). Отметим, что в окрестности уровня Ферми в манганитах наблюдается большая псевдощель [29,31–33], в результате чего плотность состояний на уровне Ферми $N_{\uparrow}(E_F)$ подавлена по сравнению с зонным значением. Учитывая это обстоятельство, для оценок бралось эффективное значение $N_{\uparrow}(E_F)_{\text{eff}} \sim N_{\uparrow}(E_F)/3$. Используя указанные оценки величин в соотношении (2), для длины свободного пробега получаем $l \sim 100$ Å. В случае контактов с характерным сопротивлением $R_N \sim 100$ Ом, согласно формуле (1), это соответствует диаметру контакта Шарвина $d \sim 100$ Å. Соотношение $l \sim d$ означает, что исследованные нами микроконтакты находились на границе диффузного ($l \ll d$) и баллистического ($l \gg d$) режимов проводимости. В частности, проводимость более низкоомных контактов близка к диффузному типу, а проводимость более высокоомных — к баллистическому.

Было изготовлено и исследовано более сотни контактов. В большинстве случаев мы получали хо-

рошо известные зависимости [5–7], отражающие свойства половинного металла, каким является LCMO. Вольт-амперные характеристики (ВАХ) таких контактов имели избыточное напряжение, т.е. постоянный сдвиг $I-V$ зависимости на величину $\pm \delta V$ относительно ВАХ в нормальном состоянии контакта $V_N = IR_N$. Характерным признаком таких контактов был резкий рост сопротивления при переходе инжектора Pb (температура сверхпроводящего перехода $T_c = 7,2$ К) или MgB_2 ($T_c = 39$ К) в сверхпроводящее состояние (см. пример на рис. 1). Контакты такого типа далее будем условно называть «контактами без эффекта близости». Наряду с «контактами без эффекта близости», нам неоднократно удавалось получать контакты, свойства которых, по нашему мнению, контролируются именно эффектами близости. Характерным признаком таких контактов является резкое падение (до 50%) сопротивления при переходе Pb или MgB_2 в сверхпроводящее состояние (см. пример на рис. 2). Вольт-амперные характеристики близостных контактов имели избыточный ток относительно ВАХ в нормальном состоянии контакта.

3. Результаты спектроскопических измерений

3.1. «Нормальное» андреевское отражение

На рис. 1 приведен пример температурной зависимости (в области сверхпроводящего перехода) сопротивления R Pb/LCMO-контакта, для которого эффекты близости не являются определяющими. При переходе инжектора в сверхпроводящее состояние наблюдается резкий рост сопротивления контакта, дифференциальная проводимость контакта dI/dV падает, а ВАХ демонстрирует избыточное напряжение. На рис. 2 приведены типичные спектроскопические характеристики контактов Pb/LCMO, Pb/La_{0,7}Sr_{0,3}MnO₃ и MgB_2 /LCMO [24]. Обработка результатов измерения и, в частности, расчеты степени спиновой поляризации носителей заряда P_C проведены в рамках диффузной и баллистической моделей контактов. Благодаря высокой прозрачности исследованных контактов ($Z \leq 0,3$) расхождение между величиной P_C , полученной с использованием формул баллистического предела [5–7,34,35], и более точными выражениями [36] не превышало 5%. Восстановленные параметры контакта в диффузном пределе имели значения $P_C = 0,8$, а баллистическом пределе $P_C = 0,75$. В наиболее реалистичной ситуации в области контакта в диффузном пределе находится не только ферромагнетик, но и сверхпроводник [37], и проводимость контакта $G(V)$ зависит от эффективных коэффициентов прохождения для электронов через

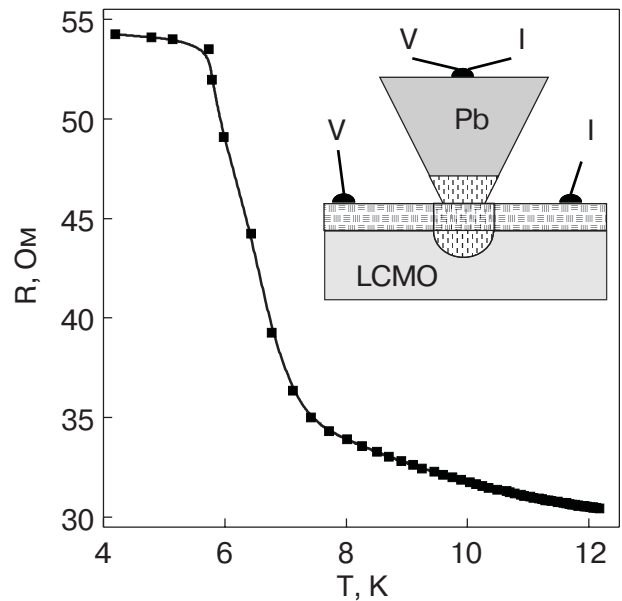


Рис. 1. Характерная $R(T)$ зависимость в области сверхпроводящего перехода Pb контакта Pb/LCMO, не проявляющего эффекты «близости». На вставке показаны структура контакта и схема измерений.

контакт со спином вверх и вниз (T_\uparrow и T_\downarrow соответственно). Поляризация носителей заряда P_C определяется из соотношения $P_C = |T_\uparrow - T_\downarrow| / (T_\uparrow + T_\downarrow)$ и была найдена равной 0,8 (детали см. в работе [24]).

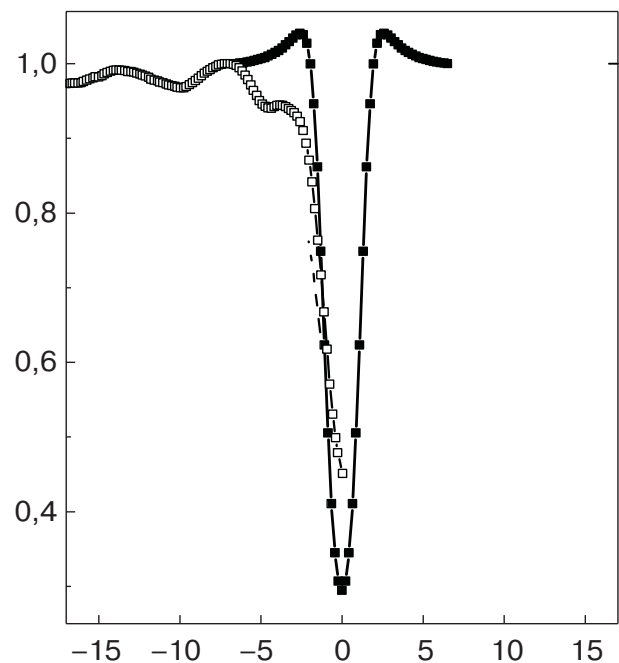


Рис. 2. Нормированная проводимость $(dI/dV)/(I/V)$ контактов Pb/LCMO, Pb/La_{0,7}Sr_{0,3}MnO₃ и MgB_2 /LCMO, для которых эффекты «близости» не являются существенными (кривые 1, 2 и 3 соответственно). Наблюдался хорошо выраженный пик вниз, обязанный обычному андреевскому отражению от «половинного» металла LCMO.

В некоторых случаях нами наблюдались также V -образные характеристики, которые не удается описать ни одним из приведенных выше приближений. Моделирование показало, что характеристики V -типа (сужение зависимостей $G(V)$ при $V \rightarrow 0$) получаются в так называемом термическом режиме, когда малы не только упругая $l < d$, но и неупругая длины свободного пробега $l_{in} < d$. В таком случае происходит диссипация энергии «горячих» электронов и температура в прилегающей к контакту области T_{eff} увеличивается. Возрастание T_{eff} приводит к уменьшению параметра энергетической щели $\Delta(T_{eff})$. В тепловом режиме с ростом напряжения смещения температура T_{eff} возрастает, что приводит к сглаживанию щелевой структуры в проводимости и появлению V -образных характеристик. Для таких контактов найденное (в баллистическом пределе) значение поляризации P_C манганита LCMO не превышало 0,7. Детальное обсуждение этих вопросов можно найти в работе [24].

3.2. Эффекты близости, «аномальное» андреевское отражение

Спектроскопические характеристики, подобные изображенным на рис. 2, наблюдаются в контактах, для которых эффектами близости можно пренебречь. Однако известно много примеров, когда взаимное влияние магнетизма и сверхпроводимости – так называемый эффект близости – в структурах сверхпроводник/ферромагнетик играет существенную роль [17–20,38–41]. Мы также неоднократно наблюдали особенности, которые можно трактовать как проявление эффекта близости. Характерным признаком таких контактов, как уже отмечалось, является резкое падение сопротивления (до 50%) при переходе Pb или MgB_2 в сверхпроводящее состояние (см. рис. 3). При более низких температурах, $T < T_c^{Pb}$ или T_c^{MgB} , в дифференциальной проводимости контакта dI/dV появлялась избыточная проводимость, а ВАХ демонстрировала избыточный ток (см. рис. 4 и ниже рис. 8). На рис. 5 приведены спектры андреевского отражения, полученные от семи разных Pb/LCMO-контактов (CP#2–CP#8).

Согласно теории андреевского отражения [4,22], если на границе sS/N -контакта нет рассеяния квазичастиц, то проводимость контакта при нулевом напряжении смещения удваивается по сравнению с проводимостью при $eV > \Delta$. Как следует из рис. 4 и 5, величина нормированной проводимости некоторых контактов Pb/LCMO близка к теоретическому пределу. Еще более неожиданным является то, что наблюдаемая в андреевских спектрах квазищелевая щель Δ_q не может быть приписана сверхпроводящему состоянию свинца. Для Pb зна-

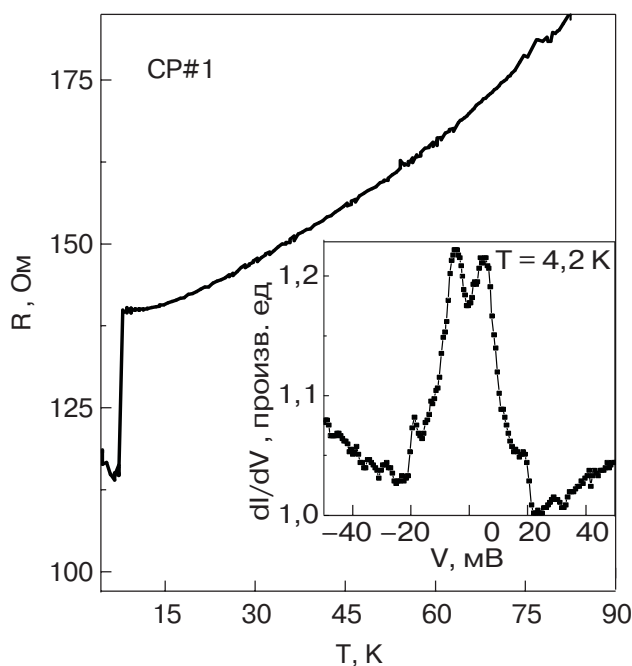


Рис. 3. $R(T)$ зависимость контакта Pb/LCMO, проявляющего эффект близости. Падение сопротивления наблюдается при переходе инжектора (Pb) в сверхпроводящее состояние. На вставке показана проводимость $dI(V)/dV$ этого же контакта.

чение $\Delta_{Pb} \approx 1,4$ мВ, в то время как для спектров на рис. 4 и 5 Δ_q достигает значений ≈ 20 мВ.

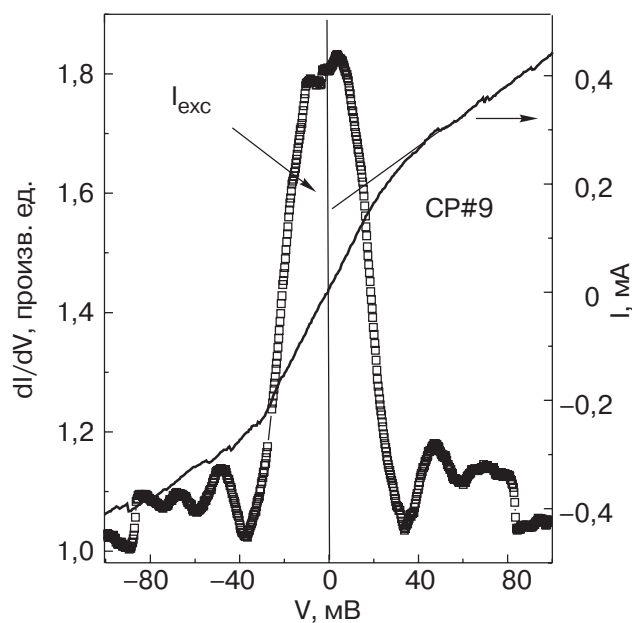


Рис. 4. Вольт-амперная характеристика и нормированная проводимость контакта Pb/LCMO, проявляющего эффект наведенной сверхпроводимости в LCMO. Наблюдается избыточный ток I_{exc} и удвоение проводимости контакта при $V \rightarrow 0$.

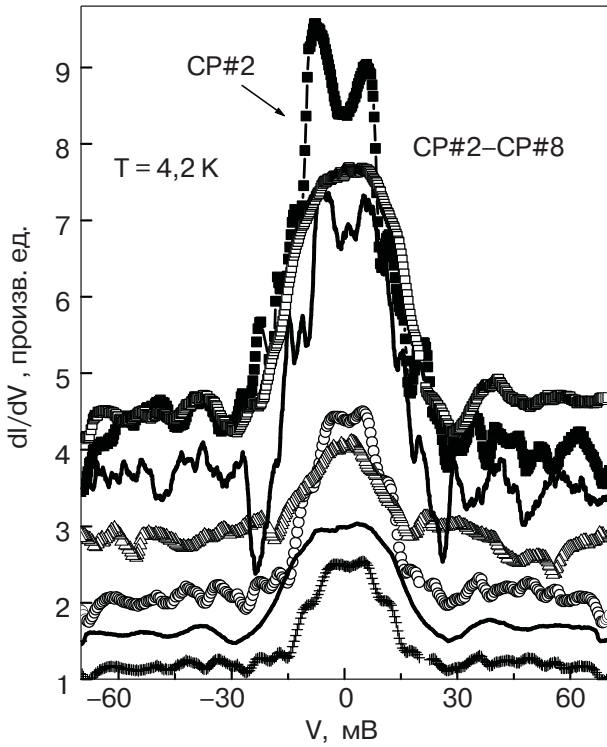


Рис. 5. Дифференциальная проводимость $dI(V)/dV$ серии контактов Pb/LCMO, проявляющих эффект близости. Кривые смещены для удобства.

На рис. 6 показана эволюция спектра андреевского отражения контакта Pb/LCMO (CP#2) с из-

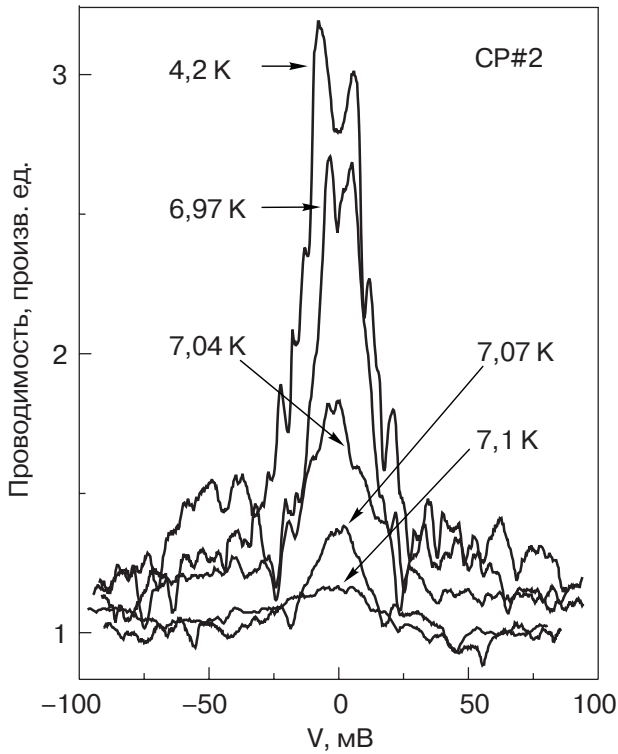


Рис. 6. Зависимость проводимости «близостного» контакта Pb/LCMO от температуры. Кривые смещены для удобства.

менением температуры и соответствующее изменение наведенной сверхпроводящей щели в манганите. Как видим, особенность в проводимости при $|V| < 20$ мВ сохраняется вплоть до температуры $T = 7,04$ К, хотя при этом отношение $G(0)/G(V > \Delta)$ заметно падает. При дальнейшем повышении температуры выше 7,1 К щелевая особенность в спектре быстро закрывается в районе $T_c \approx 7,2$ К, что соответствует критической температуре сверхпроводящего перехода свинца.

Величина избыточного тока, определенная по экстраполяции касательной к ВАХ при $V = 0$ (рис. 7, CP#9), близка к соотношению $I_{exc} = (4/3)\Delta_q/eR_N$ [22,23] с $\Delta_q \approx 20$ мВ и $R_N = 172$ Ом. Следовательно, наблюдаемый избыточный ток не может быть объяснен сверхпроводимостью свинца. Кроме того, в области $V > \Delta_q$ на ВАХ наблюдаются ступеньки (рис. 7), характерные для дискретного разрушения сверхпроводимости в точечных контактах [42,43]. Дискретные фрагменты ВАХ имеют одинаковый избыточный ток I_{exc} , а приращение сопротивления при каждом скачке соответствует разрушению сверхпроводимости в поверхностном слое LCMO. Аналогичные по характеру особенности наблюдались ранее как в контактах с обычными, так и с высокотемпературными сверхпроводниками, и интерпретировались как послойное разрушение сверхпроводимости в результате вхождения плоско-

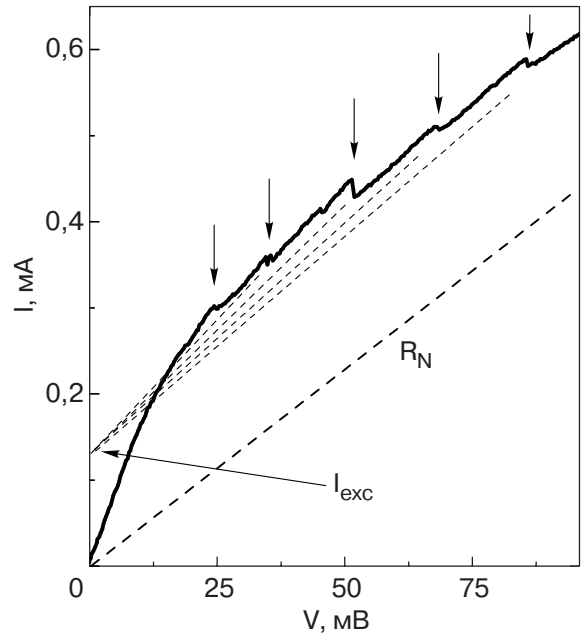


Рис. 7. Вольт-амперная характеристика контакта LCMO-Pb (контакт CP#9). Здесь R_N — сопротивление контакта в нормальном состоянии (пунктир). Стрелками указаны значения напряжения на контакте, при котором происходит «проскальзывание фазы»: скачкообразное увеличение сопротивления контакта, обусловленное дискретным разрушением сверхпроводимости в манганите.

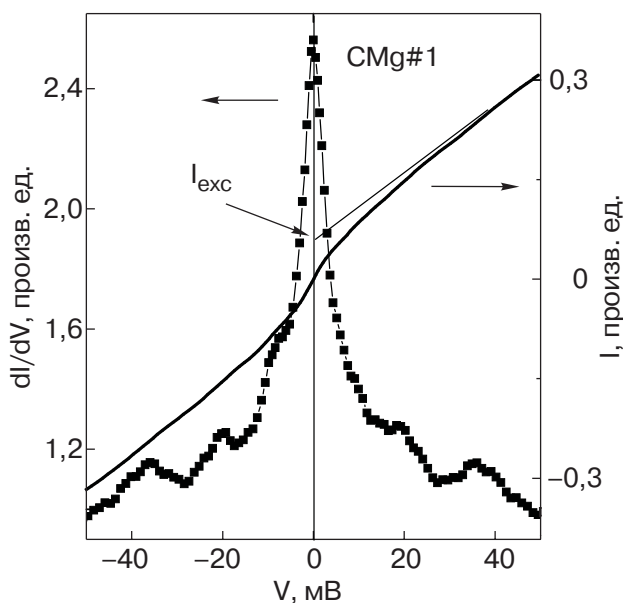


Рис. 8. Вольт-амперная характеристика и нормированная проводимость контакта MgB_2/LCMO , проявляющего эффект наведенной сверхпроводимости в LCMO. Наблюдается избыточный ток I_{exc} и удвоение проводимости контакта при $V \rightarrow 0$.

стей проскальзывания фазы [42,43]. В теории линий (плоскостей) проскальзывания фазы (см., например, [42]) показано, что каждый скачок соответствует разрушению сверхпроводимости в поверхностном слое на толщину $\delta \sim 2\xi$, где $\xi \sim \hbar v_F/\Delta$ — длина когерентности. Для энергетической щели $\Delta_q \approx 20$ мВ и скорости Ферми $v_F \approx 10^7$ см/с значение δ соответствует длине ≈ 20 Å. На рис. 7 хорошо видны пять скачков послышного разрушения сверхпроводимости, т.е. сверхпроводящее состояние наводится в слое LCMO толщиной не менее $5(2\xi) \approx \approx 200\text{--}400$ Å.

Качественно подобные зависимости мы наблюдали и для контактов MgB_2/LCMO . На рис. 8 и 9 показаны примеры спектров андреевского отражения, полученные на различных «близостных» контактах MgB_2/LCMO (контакты CMg#1–CMg#6). Для результатов, показанных на рис. 9, отношение $G(0)/G(eV > \Delta_q)$ лежит в интервале 1,2–1,3, что может быть связано с рассеянием на границе металлов [22]. В то же время проводимость некоторых близостных контактов MgB_2/LCMO (см. CMg#1 на рис. 8) при $eV < \Delta_q$ близка к теоретическому пределу. Для таких контактов наблюдаемая величина избыточного тока близка к теоретическому значению $I_{\text{exc}} = (4/3)\Delta_q/eR_N$ с $\Delta_q \approx 12$ мВ и $R_N = 200$ Ом. Напомним, что для MgB_2 (в грязном пределе) среднее значение щели $\Delta_{\text{MgB}_2} \approx 4,1$ мВ [44,45], т.е. наблюдаемый избыточный ток не может быть объяснен сверхпроводимостью дигорида магния. В

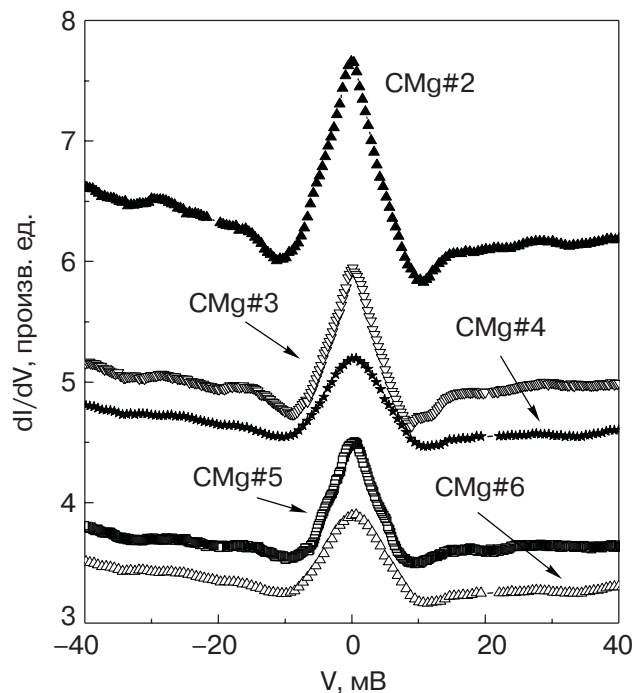


Рис. 9. Дифференциальная проводимость $dI(V)/dV$ серии контактов MgB_2/LCMO , проявляющих эффект близости. Кривые смещены для удобства.

целом контакты Pb/LCMO проявляли «близостные свойства» ярче, чем контакты MgB_2/LCMO . По-видимому, это связано с тем, что длины сверхпроводящих корреляций у Pb и MgB_2 отличаются на порядок: $\xi_{\text{Pb}} \approx 830$ Å и $\xi_{\text{MgB}_2}^c \approx 25$ Å, $\xi_{\text{MgB}_2}^{ab} \approx 65$ Å [44,45]. Вместе с тем систематичность и воспроизводимость наблюдаемых особенностей дают основание говорить об общих физических закономерностях токопереноса в близостных sS/HMF-контактах.

Отметим также, что иногда нами регистрировался «промежуточный случай», когда в спектре андреевского отражения контакта проявлялись эффекты, обусловленные как наведенной сверхпроводимостью LCMO, так и его свойствами половинного металла. Связано это, по-видимому, с остаточным влиянием участков контакта, «не подверженных» влиянию эффектов близости.

4. Обсуждение результатов

4.1. «Нормальное» андреевское отражение

С учетом различных предположений о характере проводимости контакта, максимальное значение поляризации, восстановленное нами из экспериментальных данных, составляет 80–85%. Эти результаты согласуются с данными туннельной спектроскопии [46] и расчетами зонной структуры

манганитов [30,47]. В частности, согласно [30,47], отсутствие полной поляризации зарядов в металлической фазе манганитов связано с проникновением на уровень Ферми минорной зоны $t_{2g\downarrow}$, имеющей направление спинов электронов, противоположное основной зоне $e_{1g\uparrow}$. В то же время данные фотоэмиссионной спектроскопии демонстрируют 100% поляризацию в соединении (LaSr)MnO [48]. Минорная $t_{2g\downarrow}$ зона на уровне Ферми не обнаружена в работе [49], в которой проведены исследования незанятых электронных состояний методом обратной фотоэмиссии в магнитном поле.

Наиболее вероятное происхождение отмеченных выше расхождений, по нашему мнению, связано с явлением фазовой сепарации в манганитах. В частности, для объяснения наблюдаемой нами в сверхпроводящих микроконтактах частичной спиновой поляризации тока в LCMO достаточно, чтобы в площади контакта находилась конечная (~15%) доля металлической, но неупорядоченной по спину фазы [24]. Напомним, что магнитная (и электрическая) наноразмерная неоднородность (или фазовая сепарация) рассматривается в настоящее время как фундаментальная особенность манганитов [8–11]. Для соединения $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ эксперименты (см., например, [50,51]) отмечают существование магнитных и электрических неоднородностей не только в глубине, но и на поверхности материала. Для объяснения наблюдаемой нами степени спиновой поляризации электронов в LCMO достаточно наличия фазовой сепарации на поверхности микрокристаллов наномасштаба ~ 10 Å. Следует, однако, иметь в виду, что неоднородные состояния, наблюдаемые методами ЯМР, нейтронами и андреевской спектроскопии, могут иметь разную физическую природу. Для процессов андреевского отражения характерны времена $\tau \sim \hbar/\Delta \sim 10^{-12}$ с, что намного короче процессов в более «медленных» ЯМР экспериментах (соответствующие времена $\sim 10^{-7}$ – 10^{-6} с) и короче характерного времени для нейтронных измерений. Поэтому фазовое расслоение, проявляющееся в спектрах андреевского отражения, может иметь и нестационарный характер.

4.2. Эффекты близости, триплетная сверхпроводимость

В настоящее время нет однозначного мнения относительно механизмов трансформации сверхтока в ток квазичастиц в структурах сверхпроводник – половинный ферромагнитный металл. Особенность состоит в том, что для sS /НМФ-границы обычный процесс андреевского отражения запрещен законом сохранения спина. Для преодоления этого запрета в работе [52] рассмотрена возможность токопереноса

с участием магнитной подсистемы. А именно: инжектирование куперовской пары в половинный ферромагнитный металл сопровождается одновременным излучением магнона, а обратный процесс проникновения двух электронов в сверхпроводник возможен только с одновременным поглощением спиновой волны. Характерным признаком такого токопереноса является существенная асимметрия вольт-амперной характеристики контакта. При $T \rightarrow 0$ тепловых спиновых волн нет и при разности потенциалов, требующей перехода двух электронов из НМФ в sS , ток обращается в нуль из-за отсутствия «партнера» — спиновой волны. В пределах точности измерений наблюдаемые нами $I(V)$ зависимости контактов симметричны, что позволяет исключить из рассмотрения механизм токопереноса с участием спиновых волн [52].

В sS/F -структурах избыточный ток и удвоение сверхпроводимости могут также наблюдаться, если ферромагнетик разбит на домены. В этом случае возможно так называемое нелокальное андреевское отражение, или перекрестный эффект андреевского отражения (the crossed Andreev reflection effect — CARE) [1–3]. При CARE электрон из одного магнитного домена «находит себе партнера» в домене с противоположной ориентацией намагниченности, а пара проходит в сверхпроводник. Для механизма CARE характерным является асимметрия проводимости контакта и линейное уменьшение пика $G(0)$ при увеличении магнитного поля. Асимметрия зависимости $G(V)$ обусловлена тем обстоятельством, что в плоскости сечения контакта практически всегда доли доменов с противоположной ориентацией намагниченности не равны, что и обеспечивает неэквивалентность токопереноса при $+V$ и $-V$ поляризации. По этой же причине из-за уменьшения числа доменов в области контакта эффективность CARE падает с увеличением магнитного поля, что приводит к уменьшению проводимости контакта.

Наблюдаемые нами зависимости $G(V)$ являются симметричными функциями напряжения. В то же время нам представляется маловероятным, чтобы для контактов с диаметром ~ 100 Å доля доменов с противоположной ориентацией спина всегда совпадала. Эти аргументы позволяют нам считать, что и механизм нелокального андреевского отражения не является определяющим для токопереноса в контактах Pb/LCMO и MgB₂/LCMO.

Более адекватными нам представляются модели, основанные на сверхпроводящем эффекте близости. Существующие теории предлагают несколько причин, которые могут приводить к аномальному эффекту близости и триплетному спариванию в sS /НМФ-контактах. Наиболее разработанными на

сегодняшний день являются модели [53] и [54–56,16], на которых мы и остановимся. (В работе [57] предложен механизм наведенной триплетной сверхпроводимости F -слоя, основанный на предположении, что в S -металле уже исходно существует электрон-электронное спаривание синглетного и триплетного типов. Поскольку синглетный тип сверхпроводимости для Pb и MgB_2 является общепризнанным, на таком варианте мы не останавливаемся.)

В модели [53] рассматриваются S/NMF -структуры с однородной намагниченностью F -слоя, но с магнитоактивной S/F -границей. Последнее предполагает, что при рассеянии на S/F -границе спин носителей заряда подвержен воздействию двух эффектов: спинового вращения и переворота. Из-за спинового вращения в S -металле вблизи S/F -границы всегда возникают триплетные корреляции типа $f_{\uparrow\downarrow} + f_{\downarrow\uparrow}$ с проекцией спина пары $S_Z = 0$. Далее, уже благодаря процессам, не сохраняющим спин, в области интерфейса формируются триплетные $f_{\uparrow\uparrow}$ и $f_{\downarrow\downarrow}$ пары. Хотя амплитуда триплетных корреляций $f_t = (f_{\uparrow\uparrow}, f_{\uparrow\downarrow} + f_{\downarrow\uparrow}, f_{\downarrow\downarrow})$ и много меньше синглетных, компонента с ориентацией спинов пары, параллельной намагниченности НМФ, проникает на anomalно большое расстояние $\xi_T = (D_F/2\pi T)^{1/2}$. Величина ξ_T типична для эффектов близости в sS/N -структурах и много большее глубины проникновения синглетных корреляций $\xi = (D_F/2\pi H_{exc})^{1/2} \ll \xi_T$ (D_F — коэффициент диффузии в F -металле, H_{exc} — энергия обменного поля). Отметим, что в модели [53] индуцированное триплетное спаривание имеет p -волновую симметрию.

Несколько иная модель индуцированного триплетного спаривания и anomalного эффекта близости предложена в работах [54–56]. В данном случае триплетная составляющая в сверхпроводящем спаривании возникает в S/F -структурах с неоднородной намагниченностью F -слоя. При этом триплетная корреляционная функция является нечетной функцией мацубаровской частоты $f_t(\omega_n) = -f_t(\omega_n)$, но имеет s -волновую симметрию, как и при обычном куперовском спаривании. Являясь симметричными в импульсном пространстве, триплетные корреляции не разрушаются обычными примесями, т.е. существуют и в «грязных» металлах. Компонента с параллельной ориентацией спина в паре, $f_{\uparrow\uparrow}$ или $f_{\downarrow\downarrow}$, не разрушается обменным полем и проникает в F -металл на глубину ξ_T .

Общим для моделей является то, что обе предполагают магнитную неоднородность F -слоя: макроскопического типа (например, доменных границ) в подходе [54–56] или микроскопического (напри-

мер, центров спин-флип рассеяния) в подходе [53]. Это, на наш взгляд, является важным обстоятельством. Как уже отмечалось, магнитная (и электрическая) неоднородность манганитов лантана рассматривается в настоящее время как одна из их фундаментальных особенностей.

С учетом перечисленного выше, нам представляется следующая физика токопереноса в близостных контактах $Pb/LCMO$ и $MgB_2/LCMO$. Конкретный характер магнитной неоднородности в области контакта удовлетворяет условиям образования триплетных сверхпроводящих корреляций. Компонента $f_{\uparrow\uparrow}$ (или $f_{\downarrow\downarrow}$) этих корреляций проникает в манганит на большую глубину ξ_T , индуцируя в нем триплетное сверхпроводящее состояние. На границе раздела сверхпроводящей и несверхпроводящей фаз манганита токоперенос осуществляется по андреевскому механизму с формированием пар с суммарным спином $S_Z = 1$. В результате контакты демонстрируют признаки «обычного» андреевского токопереноса: избыточный сверхток и удвоение проводимости.

К сожалению, существующие в настоящее время модели сверхпроводящего эффекта близости не предсказывают появление anomalно больших значений щели квазичастичных возбуждений, которые наблюдаются нами в андреевских спектрах. Возможно, это является отражением уже упоминавшегося нами обстоятельства, что половинные металлы следует рассматривать как системы, для которых не применимы стандартные представления теории ферми-жидкости.

5. Заключение

Методом андреевской спектроскопии исследованы свойства точечных контактов $Pb/La_{0,65}Ca_{0,35}MnO_3$ и $MgB_2/La_{0,65}Ca_{0,35}MnO_3$. Обнаружено два качественно разных типа поведения контактов. В контактах, где эффектами близости можно пренебречь, наблюдалось характерное для контактов сверхпроводника с половинным металлом избыточное напряжение в вольт-амперной зависимости контакта и подавление проводимости $G(V) = dI(V)/dV$ в области напряжений, меньших энергетической щели сверхпроводящего инжектора. Восстановленная неполная спиновая поляризация носителей заряда в $La_{0,65}Ca_{0,35}MnO_3$ наиболее естественно объясняется пространственно-неоднородным состоянием манганитов лантана и, в частности, наличием на поверхности микрокристаллов магнитонеупорядоченных областей ($\sim 10 \text{ \AA}$) с металлической проводимостью.

Транспортные свойства близостных контактов имеют особенности, типичные для андреевской проводимости структур сверхпроводник/нормальный

немагнитный металл: избыточный ток в вольт-амперной зависимости контакта и удвоение проводимости ниже температуры сверхпроводящего перехода инжектора. Полученное значение энергии квазичастичных возбудений Δ_q сверхпроводящей области $\text{La}_{0,65}\text{a}_{0,35}\text{MnO}_3$ аномально велико (≈ 20 мэВ для контактов с Рb и ≈ 12 мэВ для контактов с MgB_2), так что восстановленная в модели БКШ критическая температура наведенного сверхпроводящего состояния манганита намного превышает температуру сверхпроводящего перехода инжектора. Предполагается, что в контактах исследуемого типа реализуются условия для близостной сверхпроводимости с аномальным (триплетным) характером спаривания.

Авторы признательны В.М. Локтеву и А.Н. Омелянчуку за интерес к исследованиям. Мы также благодарны В.А. Дьяченко за помощь в приготовлении образцов.

Дополнение при корректуре. Во время нахождения рукописи в печати в *Nature* появилось сообщение [58] о наблюдении джозефсоновского сверхтока в структурах $\text{NbTiN}/\text{CrO}_2/\text{NbTiN}$ с толщиной слоя CrO_2 около 300 нм. Учитывая, что через слой половинного ферромагнитного металла такой толщины ток синглетных пар не может протекать, авторы интерпретируют полученные результаты как прямое доказательство наведенной триплетной сверхпроводимости CrO_2 . Предлагаемый авторами [58] механизм формирования триплетных по спину пар совпадает с механизмом, обсуждаемым в настоящей работе. А именно: «конверсия» спин-синглетной пары в спин-триплетную на границе раздела sS/HMF .

1. J.M. Bayers and M.E. Flatte, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 306 (1995).
2. G. Deutsher and D. Feinberg, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 487 (2000).
3. D. Beckmann, H.B. Weber, and H.V. Lohneysen, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 197003 (2004).
4. А.Ф. Андреев, *ЖЭТФ* **46**, 1823 (1964).
5. R.J. Soulen Jr., J.M. Byers, M.S. Osofsky, B. Nadgorny, T. Ambrose, S.F. Cheng, P.R. Broussard, C.T. Tanaka, J. Nowak, J.S. Moodera, A. Barry, and J.M.D. Coey, *Science* **282**, 85 (1998).
6. I.I. Mazin, A.A. Golubov, and B. Nadgorny, *J. Appl. Phys.* **89**, 7576 (2001).
7. A. Hoffmann, S.G.E. Te Velthuis, Z. Sefrioui, J. Santamaria, M.R. Fitzsimmons, S. Park, and M. Varela, *Phys. Rev.* **B72**, 140407 (2005).
8. E. Dagotto, T. Hotta, and A. Moreo, *Phys. Rep.* **344**, 1 (2001).
9. В.М. Локтев, Ю.Г. Погорелов, *ФНТ* **26**, 231 (2000).
10. E.L. Nagaev, *Phys. Rep.* **346**, 387 (2001).
11. Ю.А. Изюмов, Ю.Н. Скрябин, *УФН* **171**, 121 (2001).
12. M.B. Salamon and M. Jaime, *Rev. Mod. Phys.* **73**, 583 (2001).
13. А.В. Ведяев, *УФН* **172**, 1458 (2002).
14. I. Zutic, J. Fabian, and S. Das Sarma, *Rev. Mod. Phys.* **76**, 323 (2004).
15. В.Ю. Ирхин, М.И. Кацнельсон, *УФН* **164**, 705 (1994).
16. F.S. Bergeret, A.F. Volkov, and K.B. Efetov, *Rev. Mod. Phys.* **77**, 1321 (2005).
17. M. Kasai, Y. Kanke, T. Ohno, and Y. Kozono, *J. Appl. Phys.* **72**, 5344 (1992).
18. V.T. Petrashov, I.A. Sosnin, I. Cox, A. Parsons, and C. Troadec, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 3281 (1999).
19. Z. Sefrioui, D. Arias, V. Pena, J.E. Villegas, M. Varela, P. Prieto, C. Leon, J.L. Martinez, and J. Santamaria, *Phys. Rev.* **B67**, 214511 (2003).
20. V. Pena, Z. Sefrioui, D. Arias, C. Leon, J. Santamaria, M. Varela, S.J. Pennycook, and J.L. Martinez, *Phys. Rev.* **B69**, 224502 (2004).
21. N. Yoshida, Y. Tanaka, J. Inoue, and S. Kashiwaya, *J. Phys. Soc. Jpn.* **68**, 1071 (1999).
22. G.E. Blonder, M. Tinkham, and T.M. Klapwijk, *Phys. Rev.* **B25**, 4515 (1982).
23. А.В. Зайцев, *ЖЭТФ* **86**, 1742 (1984).
24. А.И. Дьяченко, В.А. Дьяченко, В.Ю. Таренков, В.Н. Криворучко, *ФТТ* **48**, 407 (2006).
25. И.К. Янсон, *ФНТ* **17**, 275 (1991).
26. M. Ziese, *Rep. Prog. Phys.* **65**, 143 (2002).
27. G. Wexler, *Proc. Phys. Soc. (London)* **89**, 927 (1966).
28. Guo-meng Zhao, V. Smolyaninova, W. Prellier, and H. Keller, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 6086 (2000).
29. J. Mitra, A.K. Raychaudhuri, Ya.M. Mukovskii, and D. Shulyatev, *Phys. Rev.* **B68**, 134428 (2003).
30. W.E. Pickett and D.J. Singh, *Phys. Rev.* **B53**, 1146 (1996).
31. T. Saitoh, D.S. Dessau, Y. Moritomo, and T. Kimura, *Phys. Rev.* **B62**, 1039 (2000).
32. В.Ю. Таренков, А.И. Дьяченко, В.Н. Криворучко, *ЖЭТФ* **120**, 205 (2001).
33. M. Edwards, *Adv. Phys.* **51**, 1259 (2002).
34. Y. Ji, G.J. Strijkers, F.Y. Yang, and C.L. Chien, *Phys. Rev.* **B64**, 224425 (2001).
35. B. Nadgorny, I.I. Mazin, M. Osofsky, R.J. Soulen, Jr., P. Broussard, R.M. Stroud, D.J. Singh, V.G. Harris, A. Arsenov, and Ya. Mukovskii, *Phys. Rev.* **B63**, 184433 (2001).
36. Б.П. Водопьянов, Л.П. Тагиров, *Письма ЖЭТФ* **77**, 153 (2003).
37. F. Perez-Willard, J.C. Cuevas, C. Surgers, P. Pfundstein, J. Kopu, M. Eschrig, and H.V. Lohneysen, *Phys. Rev.* **B69**, 140502 (2004).
38. V.V. Ryazanov, V.A. Oboznov, A.Yu. Rusanov, A.V. Veretennikov, A.A. Golubov, and J. Aarts, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 2427 (2001).
39. V.V. Ryazanov, V.A. Oboznov, A.V. Veretennikov, and A.Yu. Rusanov, *Phys. Rev.* **B65**, 020501 (2002).
40. Y. Blum, A. Tsukernik, M. Karpovskii, and A. Palvski, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 187004 (2002).

41. T. Kontos, M. Aprili, J. Lesueur, F. Genet, B. Stephanidis, and R. Boursier, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 137007 (2002).
42. И.М. Дмитренко, *ФHT* **22**, 849 (1996).
43. A.G. Sivakov, A.M. Glukhov, A.N. Omelyanchouk, Y. Koval, P. Müller, and A.V. Ustinov, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 267001 (2003).
44. M. Xu, H. Kitazawa, Y. Takano, J. Ye, K. Nishida, H. Abe, A. Matsushita, N. Tsujii, and G. Kido, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 2779 (2001).
45. S. Suoma, Y. Machida, T. Sato, T. Takahashi, H. Matsui, S.-C. Wang, H. Ding, A. Kaminski, J.C. Campuzano, S. Sasaki, and K. Kadowaki, *Nature (London)* **423**, 65 (2003).
46. Moon-Ho Jo, N.D. Mathur, N.K. Todd, and M.G. Blamire, *Phys. Rev.* **B61**, 14905 (2000).
47. S. Satpathy, Z.S. Popović, and F.R. Vakajlović, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 960 (1996).
48. J.-H. Park, E. Vescovo, H.-J. Kim, C. Kwon, R. Ramesh, and T. Venkatesan, *Nature (London)* **392**, 794 (1998).
49. R. Bertacco, M. Portalupi, M. Marcon, L. Duo, F. Ciccacci, M. Bowen, J.P. Contour, and A. Barthelemy, *JMMM* **242–245**, 710 (2002).
50. M. Bibes, Ll. Balcells, S. Valencia, J. Fontcuberta, M. Wojcik, E. Jedryka, and S. Nadolski, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 067210 (2001).
51. M.M. Savosta, V.N. Krivoruchko, I.A. Danilenko, V.Yu. Tarenkov, T.E. Konstantinova, V.A. Borodin, and V.N. Varyukhin, *Phys. Rev.* **B69**, 024413 (2004).
52. G. Tkachov, E. McCann, and V. Fal'ko, *Phys. Rev.* **B65**, 024519 (2001).
53. M. Eschrig, J. Kopu, J.C. Cuevas, and G. Schon, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 137003 (2003).
54. A. Kadigrobov, R.I. Skekhter, and M. Jonson, *Europhys. Lett.* **54**, 394 (2001).
55. F.S. Bergeret, A.F. Volkov, and K.B. Efetov, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 4096 (2001).
56. T. Lofwander, Th. Champel, J. Durst, and M. Eschrig, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 187003 (2005).
57. V.M. Edelstain, *Phys. Rev.* **B67**, 020505(R) (2003).
58. R.S. Keizer, S.T.B. Goennenwein, T.M. Klapwijk, G. Miao, G. Xiao, and A. Gupta, *Nature (London)* **439**, 825 (2006).

The Andreev spectroscopy of low-temperature superconductor–manganite point contacts

A.I. D'yachenko, V.N. Krivoruchko, and V.Yu. Tarenkov

The Andreev reflection in low-temperature superconductor (Pb or MgB₂)–manganite La_{0.65}Ca_{0.35}MnO₃ (LCMO) contacts have been investigated. In most cases, typical of superconductor/half-metallic ferromagnet contacts for a voltage range $e|V| \leq \Delta_S$, where Δ_S is the energy gap of the superconducting injector, an excess voltage V_{exc} and a suppression of the contact conductivity, $G(V) = dI(V)/dV$, are observed. However, a number of contacts at $e|V| \leq \Delta_S$ reveal an increase in conductivity and an excess current in the current-voltage dependences. The behavior of the observed $dI(V)/dV$ dependence in such contacts corresponds to Andreev spectra for a superconductor with an energy gap much larger than that of the injector Δ_S . It is suggested that in such contacts the specific conditions are realized due to which the Cooper pairs penetration from the electrode with a singlet order parameter into the manganite induces a superconducting state with triplet type correlations in the manganite surface region.

Keywords: proximity effect, Andreev reflection, half-metallic ferromagnet, contact spectroscopy, triplet superconductivity.